

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 10-340731

(43)Date of publication of application : 22.12.1998

(51)Int.Cl.

H01M 8/02
H01M 8/10

(21)Application number : 09-159325

(71)Applicant : E I DU PONT DE NEMOURS &
CO

(22)Date of filing :

03.06.1997

(72)Inventor : MUKOYAMA JUN

(54) SOLID POLYMER-BASED ELECTROLYTE TYPE FUEL CELL

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide superior battery output properties of a solid polymer-based electrolyte type fuel cell by adjusting the wettability of an ion-exchange fluoro polymer solvent-containing solution with a carbon-supporting body on which a catalytically active particle is carried and improving the utilization factor of the catalyst and the ion conductivity.

SOLUTION: A solid polymer-based electrolyte type fuel cell is constituted of electrodes and solid polymer electrolytic substance members, and each of the electrodes comprises a carbon supporting body for supporting a particle having catalytically active property, a catalytic layer formed by immobilizing a mixture of a solvent having 5 degree or smaller contact angle to the carbon supporting body to support a catalytically active particle and a solid polymer electrolytic substance on the carbon supporting body, and a diffusion layer contacting the catalytic layer and each of the membranes is jointed to the electrodes to compose a membrane-electrode jointed body. Consequently, the contact surface area of the catalytic particle and the electrolytic substance is kept wide, and the utilization factor of the catalytically active particle and ion conductivity are improved and superior battery output can be obtained.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 03.06.2004

[Date of sending the examiner's decision of rejection] 26.05.2006

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or

application converted registration]
[Date of final disposal for application]
[Patent number]
[Date of registration]
[Number of appeal against examiner's
decision of rejection]
[Date of requesting appeal against
examiner's decision of rejection]
[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平10-340731

(43) 公開日 平成10年(1998)12月22日

(51) Int. CL⁶
H 0 1 M 8/02

識別記号

8/10

P I
H 0 1 M 8/02

8/10

P
E

審査請求 未請求 請求項の数 2 F D (全 4 頁)

(21) 出願番号 特願平9-158325

(22) 出願日 平成9年(1997)8月3日

(71) 出願人 390023674

イー・アイ・デュポン・ドウ・ヌムール・
アンド・カンパニー
E. I. DU PONT DE NEMO
URS AND COMPANY
アメリカ合衆国、デラウェア州、ウィルミ
ントン、マーケット・ストリート 1007

(72) 発明者 向山 純

神奈川県横浜市都筑区早渕二丁目2番1号
デュポン株式会社中央技術研究所内

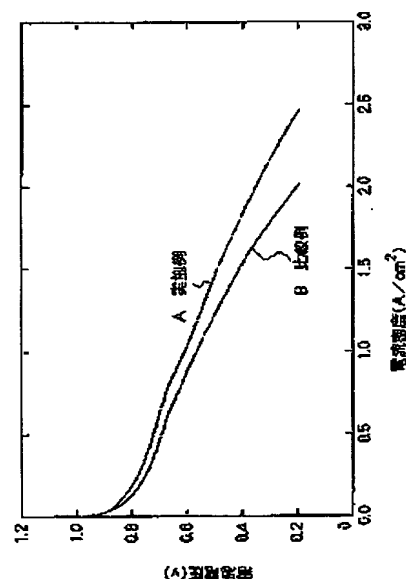
(74) 代理人 弁理士 緒 正英

(54) 【発明の名称】 固体高分子電解質型燃料電池

(57) 【要約】

【課題】 固体高分子電解質型燃料電池におけるイオン交換フッ素ポリマー溶媒溶液の触媒活性粒子が担持される炭素支持体に対する濡れ性を調整し、触媒利用率、イオン伝導性を改善することによって、優れた電池出力特性を得ること。

【解決手段】 触媒活性を示す粒子を支持する炭素支持体と、前記触媒活性粒子を支持する炭素支持体に対する接触角が5度以下となる溶媒と固体高分子電解質の混合物を用いて前記炭素支持体上に固定することによって形成した触媒層と、前記触媒層と接触する拡散層とから成る電極と、前記電極と接合して膜電極接合体を構成する固体高分子電解質膜とから固体高分子電解質型燃料電池を構成することによって、触媒粒子と電解質との接触面積が大きくなり、触媒活性粒子の利用率、イオン伝導性が向上し、優れた電池出力が得られる。



(2)

特開平10-340731

1

2

【特許請求の範囲】

【請求項1】 触媒活性を示す粒子を支持する炭素支持体と、前記触媒活性粒子を支持する炭素支持体に対する接触角が5度以下となる溶媒と固体高分子電解質の混合物を用いて前記炭素支持体上に固定することによって形成した触媒層と、前記触媒層と接触する拡散層とから成る電極と、前記電極と接合して膜電極接合体を構成する固体高分子電解質膜とから構成することを特徴とする固体高分子電解質型燃料電池。

【請求項2】 前記固体高分子電解質がパーフルオロスルホン酸ポリマーとしたことを特徴とする請求項1に記載の固体高分子電解質型燃料電池。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、燃料及び酸化剤から電気エネルギーを直接に発生するための触媒活性粒子から製造されるガス拡散電極と、イオン交換膜とによって構成される膜電極接合体からなる固体高分子電解質型燃料電池に関するものであり、特に固体高分子電解質を含む触媒層中のイオン伝導性と触媒活性粒子の利用率を改善したイオン交換膜を使用した膜電極接合体に関するものである。

【0002】

【従来の技術】固体高分子電解質型燃料電池は、互いに対向して配設されたガス拡散電極のカソード及びアノードと、両電極に接触しながらその間に介在し、保持されている電解質を実質的に通過させず、イオンを選択的に通過させるイオン交換膜とから構成される膜電極接合体によって構成される単位電池を、ガス流通手段を設けたバイポーラプレートを用いて交互に複数個積層され構成されている。この燃料電池において、水素等の燃料ガス及び酸素等の酸化剤のそれぞれが、ガス拡散電極のアノード側またはカソード側に供給されることによって起る電気化学反応を利用して、すなわち燃料が電気触媒的に酸化されると同時に酸化剤が電気触媒的に還元されて、化学反応エネルギーが直接電気エネルギーに変換されることによって発電されるものである。

【0003】ガス拡散電極は、白金、ルテニウム、ロジウム、イリジウム、スズ及びモリブデンならびにそれらの合金等の触媒を担持させた炭素支持体の表面に、イオン交換膜であるパーフルオロビニルエーテルとテトラフルオロエチレンの共重合体からなるパーフルオロカーボンスルホン酸樹脂膜を固定した触媒層を具備する。触媒層は、燃料ガス及び酸化剤ガスに接し易くするように、通常カーボンペーパー等のような多孔質基材の拡散層上に支持されている。触媒担持炭素材料は本来疎水性の材料である一方、イオン交換ポリマーとして用いられる固体高分子電解質溶液は、従来から炭化水素溶媒と水との溶液中にフッ化スルホン酸ポリマーを含むものであり、水を約25%～45%程度含有している。従って、電極

の炭素支持体に対する前記電解質溶液の接触角が大きくなっていた。すなわち、触媒担持炭素支持体上で、白金等の触媒粒子が堆積されていない部分及び触媒粒子が堆積している部分の前記電解質溶液への濡れ性が低下し、前記触媒がイオン交換フッ素ポリマーからなる電解質によって十分に覆われなくなる。ここで、接触角とは電解質溶液の液滴の表面が固体の炭素支持体の表面と交わる点で液滴面に引いた接線と前記炭素支持体表面とのなす角で表される。

【0004】前記電極を構成する触媒が十分に電解質に覆われないために、その触媒利用効率が影響を受け、電極に供給される燃料ガス、酸化剤ガスとの電気化学反応が効率良く、安定して進行せず、よって電池の出力特性が得られない。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】ところが、前記イオン交換フッ素ポリマーを溶解する必要性及び水との親和性に基づく要求から、前述のとおりイオン交換フッ素ポリマーの溶媒溶液として、例えばプロパノール、エタノールまたはブタノール等のアルコールと水との混合溶液が使用されていた。すなわち、このイオン交換フッ素ポリマーの溶媒溶液については、触媒利用効率の向上、イオン交換性能の維持を達成する目的で、触媒活性粒子が担持される炭素支持体に対する濡れ性の調整が行われていなかった。そこで、イオン交換フッ素ポリマーを当該分野で公知である方法により溶解することができ、イオン交換フッ素フィルムまたは膜を形成するためのポリマー溶液を製造でき、且つ触媒活性粒子を担持する炭素支持体に対する濡れ性をも改善することができる溶媒が必要とされている。

【0006】本発明者は、上記課題について種々検討した結果、上記アルコールと水混合溶液中のアルコールと水との混合比を以って、炭素支持体に対するイオン交換フッ素ポリマーを溶解した溶液の接触角を調整し、前記炭素支持体に対するその濡れ性を改善することができ、結果として電池の出力特性を向上することを見出し、本発明を完成するに至った。本発明の固体高分子電解質型燃料電池は、触媒活性を示す粒子を支持する炭素支持体と前記触媒活性粒子を支持する炭素支持体に対する接触角が5度以下となる溶媒と固体高分子電解質の混合物を用いて前記炭素支持体上に固定することによって形成した触媒層と、前記触媒層と接触する拡散層とから成る拡散電極と、前記電極と接合して膜電極接合体を構成する固体高分子電解質膜とから構成する。本願の第2の発明に固体高分子電解質型燃料電池は、第1の発明における前記固体高分子電解質がパーフルオロスルホン酸ポリマーとしたことを特徴とする。

【0007】

【発明の実施の形態】本発明による固体高分子電解質型燃料電池の電極は、前記触媒層と拡散層によって構成さ

(3)

特開平10-340731

3

れる。この触媒層は、炭素支持体上に白金が備わっている触媒と、溶剤にパーフルオロカーボンスルホン酸樹脂を溶解した溶液とのインク組成物を当該技術分野において公知の塗布、スプレーまたは他の方法により、カーボンペーパーまたはカーボクロス等の拡散層上またはイオン交換膜上にコートして得るか、または白金等の触媒を担持している炭素粉末を当該技術分野で公知の方法を利用して、あらかじめコートしたものの上に、前記フッ素ポリマー溶液を塗布またはスプレーすることによって得ることができる。前記白金触媒層を担持する炭素支持体は、粒子径が $0.1 \sim 10 \mu\text{m}$ の炭素粉末粒子である。この場合、本発明の固体高分子電解質型燃料電池は、 $1 \sim 50 \mu\text{m}$ 程度の厚みを有する触媒層を用いることが要求されている。本発明においては、触媒粒子が、触媒層中に約 $0.1 \text{ mg/cm}^2 \sim 1 \text{ mg/cm}^2$ 及びそれ以上の範囲で堆積されることが望ましい。

【0008】本発明の固体高分子電解質となるイオン交換膜の官能基を有する成分としては、含むフッ素高分子を骨格とし、官能基として、スルホン酸基、カルボン酸基及びリン酸基のいずれか一つまたは複数を含むものが挙げられる。一般には、パーフルオロビニルエーテルとテトラフルオロエチレンの共重合体からなるパーフルオロカーボンスルホン酸樹脂が好適に採用されている。尚、前記官能基を有するフルオロカーボン重合体を構成するモノマーであるテトラフルオロエチレンの代わりにヘキサフルオロプロピレン、クロロトリフルオロエチレン、パーフルオロアルコキシビニルエーテルのようなパーフルオロオレフィンを用いることも可能である。共重合後、必要であれば、例えば加水分解等の後処理によってプロトン移動性の官能基へと変換することもできる。官能基を有する成分の交換容量は、1 g当たりの官能基のモル数で定義され、通常、滴定法により測定される。一般的に官能基を有する成分の交換容量は、 $0.8 \sim 2 \text{ ミリ当量/g}$ であり、好ましくは $0.9 \sim 2 \text{ ミリ当量/g}$ である。 0.8 ミリ当量/g より小さいと抵抗が大きくなり性能が低下し、 2 ミリ当量/g より大きいと膜の構造物としての強度低下が大きくなる。このパーフルオロカーボンスルホン酸樹脂イオン交換ポリマーとしては、米国イー・アイ・デュポン・ドウ・ヌムール・アンド・カンパニーのNAFION（登録商標）溶液がある。

【0009】本発明において、イオン交換フッ素ポリマー溶液中のポリマー濃度は、一般的に約1重量%～10重量%であり、その溶液は、パーフルオロビニルエーテルとテトラフルオロエチレンの共重合体であるフッ素ポリマーと新規な溶媒とから製造される。溶液の調製は、次の通りである。攪拌チューブ等の容器中に水と有機溶剤の混合溶媒とフッ素ポリマー、例えばパーフルオロビニルエーテルとテトラフルオロエチレン共重合体との混合物を添加し、約 $180 \sim 250^\circ\text{C}$ の範囲内の温度で、

4

少なくとも0.5時間接触させる。その接触は、閉鎖された圧力容器を振動させるか振盪させることにより通常攪拌しながら行なう。そして冷却することによって、イオン交換フッ素ポリマーが得られる。

【0010】前記イオン交換フッ素ポリマーの溶液は、ポリマーをアルコール溶液、例えばプロパノールまたはイソプロピルアルコール、あるいは他のアルコール類、例えばエタノールまたはブタノールとの溶液内に溶解したものである。本発明においては、メタノール、プロパノール、イソプロパノール、ブチルアルコール、イソブチルアルコール、メトキシエタノール、メトキシプロパノール、エトキシエタノール、メチルエチルケトン等の水溶性の有機溶剤のうち、少なくとも一つまたは複数を含む有機溶剤を用いることもできる。その水溶性有機溶剤と水との混合比は、有機溶剤が80重量%～100重量%、水が0重量%～20重量%であり、好ましくは有機溶剤が85重量%～100重量%、水が0重量%～15重量%であり、特に好ましくは、有機溶剤が90～100、水が0～10である。この混合溶媒の前記炭素支持体に対する接触角は、 5° 以下の範囲である。混合溶媒中の有機溶剤が80重量%より少ないと、その混合溶媒の前記炭素支持体に対する接触角が、 5° を超え、更にその有機溶剤が含まれる量の減少とともに、それぞれの接触角は大きくなる傾向がある。この接触角が、 5° を超える場合、イオン交換ポリマー溶液と触媒粒子との接触面積が急激に減少し、イオン伝導性が低下することがわかった。

【0011】

【実施例】以下、本発明の実施例について説明する。

（実施例）E-T E K社製電極（炭素支持体上の白金担持量 0.5 mg/cm^2 ）に、炭素担持体に対する接触角が 1.8° 度であるようなエチルアルコール/水の混合溶媒とプロトンを選択的に透過する米国デュポン社製のNAFION（登録商標）溶液を、例えばはけ処理または噴霧によって塗布し、十分に乾燥した後、この電極層とパーフルオロビニルエーテルとテトラフルオロエチレンの共重合体からなるイオン交換膜として、既に加水分解を終了した膜厚 $50 \mu\text{m}$ の米国デュポン社製NAFION（登録商標）NF 112とによって、 135°C 、 50 kPa/cm^2 、2分間の条件で電極層と膜とを熱圧着し膜電極接合体を作製した。この膜電極接合体が内部に固定された、サーペンタイン型の溝を有し、電極面積が 25 cm^2 であるカーボンブロックと面ヒーターを使用した実験用燃料セル内を、 50°C のもとで外部供給源からそれぞれ燃料ガスとしての水素ガスを、酸化剤ガスとして酸素を供給して運転し、この膜電極接合体の電圧と電流密度を測定する。その結果を図1に報告する。

【0012】（比較例）E-T E K社製電極（炭素支持体上の白金担持量 0.5 mg/cm^2 ）に、炭素担持体に対する接触角が 3.8° 度であるプロピルアルコール/水の混

(4)

特開平10-340731

5

6

台溶媒とプロトンを選択的に透過する米国デュボン社製のNAFION(登録商標)溶液を、実施例同様、塗布し、十分に乾燥した後、この電極層と既に加水分解を終了した膜厚50 μ mの米国デュボン社製NAFION(登録商標)NF112とによって、135℃、50kq/cm²、2分間の条件で電極層と膜とを熱圧着し膜電極接合体を作製した。得られた膜電極接合体を実施例同様に実験用燃料セル内に固定して、この膜電極接合体の電圧と電流密度を測定する。その結果を図1に報告する。

【0013】図1に、本発明の実施例及び比較例の膜電極接合体の電圧-電流特性をそれぞれ示した。本発明の実施例の溶媒を用いた膜電極接合体の電流電圧曲線は曲線Aの通りであり、電流密度2A/cm²において、電池電圧0.38Vを示した。一方、比較例の膜電極接合体の電流電圧曲線は曲線Bの通りであり、電流密度2A/cm²において、電池電圧0.2Vを示した。

【0014】図1から、固体高分子電解質型燃料電池を構成する固体高分子電解質溶液の溶媒の触媒担持炭素支持体に対する接触角を調整し、触媒粒子が電解質によって十分覆われる本発明の固体高分子電解質型燃料電池*、その接触角を調整していない従来の固体高分子電解*

*質型燃料電池にくらべ、その電池出力に優れていることが分かった。その触媒担持炭素支持体に対する接触角が5°以下となるような溶媒を用いた固体高分子電解質溶液によって本発明の効果が得られることがわかった。

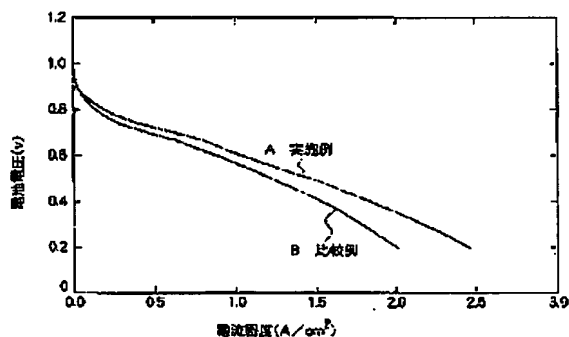
【0015】

【発明の効果】以上述べたように、本発明によれば、膜電極接合体を構成する触媒層の固体高分子電解質を触媒活性粒子を担持した炭素支持基体と接触するように形成する際、その固体高分子電解質溶液の前記炭素支持基体に対する接触角を調整することによって、固体高分子電解質が前記炭素支持体に固定、接合する面積を増大させる結果、その触媒層中での触媒活性粒子の利用効率及びイオン伝導率が向上することによって、優れた電池出力特性を得ることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】固体高分子電解質型燃料電池の膜電極接合体の電極層において、導電性を示す触媒活性粒子を支持する炭素支持体と触媒層を形成する固体高分子電解質溶液の溶媒の前記炭素支持体に対する接触角と燃料電池の電流-電圧特性変化を示すグラフである。

【図1】



*** NOTICES ***

JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention relates to the membrane electrode zygote which used the ion exchange membrane which has improved the ion conductivity in the catalyst bed containing especially a solid-state polyelectrolyte, and the utilization factor of a catalytic activity particle about the solid-state polyelectrolyte mold fuel cell which consists of a membrane electrode zygote constituted from a fuel and an oxidizer by the gas diffusion electrode manufactured from the catalytic activity particle for generating electrical energy directly, and ion exchange membrane.

[0002]

[Description of the Prior Art] Through the bipolar plate which formed the gas instrument of circulation, the laminating of two or more solid-state polyelectrolyte mold fuel cells is carried out by turns, and the unit cell constituted with the membrane electrode zygote which consists of the cathode of a gas diffusion electrode and anode which countered mutually and were arranged, and ion exchange membrane which it intervenes [ion exchange membrane] between them, does not pass substantially the electrolyte currently held, contacting two electrodes, and passes ion alternatively is constituted. In this fuel cell, using the electrochemical reaction which occurs by [of oxidizers, such as fuel gas, such as hydrogen, and oxygen,] supplying an anode [of a gas diffusion electrode], or cathode side, respectively, an oxidizer is returned in electrocatalysis at the same time a fuel oxidizes in electrocatalysis, and it generates electricity by transforming chemical reaction energy into direct electrical energy.

[0003] A gas diffusion electrode possesses the catalyst bed which fixed the perfluorocarbon-sulfonic-acid resin film which consists of a copolymer of the perfluoro vinyl ether which is an ion exchange membrane, and tetrafluoroethylene to the front face of the carbon base material which made the catalyst of platinum, a ruthenium, a rhodium, iridium, tin, molybdenum, those alloys, etc. support. The catalyst bed is usually supported on the diffusion layer of porosity base materials, such as carbon paper, so that it may be made easy to touch fuel gas and oxidizing agent gas. While a catalyst support carbon material is an ingredient of original hydrophobicity, the solid-state polyelectrolyte solution used as an ion-exchange polymer contains water about 25% to about 45% including a fluoride sulfonic-acid polymer in the solution of a hydrocarbon solvent and water from the former. Therefore, the contact angle of said electrolytic solution to the carbon base material of an electrode was large. That is, the wettability to said electrolytic solution of the part which the part and catalyst particles which the catalyst particle has not deposited, such as platinum, have deposited on a catalyst support carbon base material falls, and it is no longer covered fully with the electrolyte with which said catalyst consists of an ion-exchange fluorine polymer. Here, it is expressed with the angle of the tangent which the front face of the drop of an electrolyte solvent drew to the drop side in that the front face of a solid carbon base material is crossed, and said carbon support surface to make a contact angle.

[0004] Since the catalyst which constitutes said electrode is not fully covered with an electrolyte, electrochemical reaction with the fuel gas with which the catalyst use effectiveness is influenced and is supplied to an electrode, and oxidant gas is efficient, and does not stabilize and advance, and, therefore, the output characteristics of a cell are not obtained.

[0005]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] However, the mixed solution of alcohol, such as propanol, ethanol, or a butanol, and water was used as a solvent solution of an ion-exchange fluorine polymer as above-mentioned from the demand based on the need of dissolving said ion-exchange fluorine polymer, and compatibility with water. That is, about the solvent solution of this ion-exchange fluorine polymer, it is the purpose which attains improvement in catalyst use effectiveness, and maintenance of the ion-exchange

engine performance, and wettability adjustment to the carbon base material with which a catalytic activity particle is supported was not performed. Then, the solvent which can also improve the wettability to the carbon base material which can dissolve an ion-exchange fluorine polymer by the well-known approach in the field concerned, and can manufacture the polymer solution for forming an ion-exchange fluorine film or the film, and supports a catalytic activity particle is needed.

[0006] the result to which this invention person examined many things about the above-mentioned technical problem -- the mixing ratio of the above-mentioned alcohol, the alcohol in a water mixed solution, and water -- with -- **** -- the contact angle of the solution which dissolved the ion-exchange fluorine polymer to a carbon base material can be adjusted, the wettability to said carbon base material can be improved, and it came to complete a header and this invention for improving the output characteristics of a cell as a result. The solid-state polyelectrolyte mold fuel cell of this invention consists of solid-state polyelectrolyte film which joins to the diffusion electrode which consists of the catalyst bed formed by fixing on said carbon base material using the mixture of the solvent with which the contact angle over the carbon base material which supports the particle which shows catalytic activity, and the carbon base material which supports said catalytic-activity particle becomes 5 or less times, and a solid-state polyelectrolyte, and the diffusion layer in contact with said catalyst bed, and said electrode, and constitutes a membrane electrode zygote. A solid-state polyelectrolyte mold fuel cell is characterized by said solid-state polyelectrolyte in the 1st invention considering as a perfluoro sulfonic-acid polymer at invention of the 2nd of this application. [0007] [Embodiment of the Invention] The electrode of the solid-state polyelectrolyte mold fuel cell by this invention is constituted by said catalyst bed and diffusion layer. This catalyst bed sets the ink constituent of the catalyst equipped with platinum on the carbon base material, and the solution which dissolved perfluorocarbon-sulfonic-acid resin in the solvent to the technical field concerned. By well-known spreading, the spray, or other approaches A well-known approach is used for the carbon powder which carries out a coat, and obtains on diffusion layers, such as carbon paper or a carbon cross, or ion exchange membrane, or is supporting the catalyst of platinum etc. by the technical field concerned. Although the coat was carried out beforehand, upwards, said fluorine polymer solution can be obtained spreading or by carrying out a spray. The carbon base material which supports said platinum metal is a carbon powder particle whose particle diameter is 0.01-several micrometers. In this case, it is required that the catalyst bed which has the thickness of about 1-50 micrometers should be used for the solid-state polyelectrolyte mold fuel cell of this invention. In this invention, it is desirable for a catalyst particle to deposit into a catalyst bed about 0.01 mg/cm² - about 1 mg/cm², and in beyond it.

[0008] The included fluorine giant molecule is made into a frame as a component which has the functional group of the ion exchange membrane used as the solid-state polyelectrolyte of this invention, and what has any one or the plurality of a sulfonic group, a carboxylic-acid radical, and a phosphoric-acid radical is mentioned as a functional group. Generally, the perfluorocarbon-sulfonic-acid resin which consists of a copolymer of perfluoro vinyl ether and tetrafluoroethylene is adopted suitably. In addition, it is also possible to use a perfluoro olefin like hexafluoropropylene, chlorotrifluoroethylene, and perfluoro alkoxy vinyl ether instead of the tetrafluoroethylene which is the monomer which constitutes the fluorocarbon polymer which has said functional group. After copolymerization, if required, it is also convertible for the functional group of proton shift nature with after treatment, such as hydrolysis, for example. The exchange capacity of the component which has a functional group is defined by the number of mols of the functional group perg, and is usually measured by the titrimetric method. The exchange capacity of the component which generally has a functional group is 0.8 - 2 milliequivalent /g, and is 0.9 - 2 milliequivalent /g preferably. If smaller than 0.8 milliequivalent / g, resistance will become large, the engine performance will fall, and if larger than 2 milliequivalent / g, the fall on the strength as the membranous structure will become large. As this perfluorocarbon-sulfonic-acid resin ion-exchange polymer, there is a NAFION (trademark) solution of U.S. I eye E. I. du Pont de Nemours dough NUMURU- and - Company.

[0009] In this invention, generally the polymer concentration in an ion-exchange fluorine polymer solution is about 1 % of the weight - 10 % of the weight, and the solution is manufactured from perfluoro vinyl ether, the fluorine polymer which is the copolymer of tetrafluoroethylene, and a new solvent. The preparation of a solution is as follows. Mixture with water, the mixed solvent of an organic solvent, a fluorine polymer, for example, perfluoro vinyl ether, and a tetrafluoroethylene copolymer is added in containers, such as a shaking tube, and it is made to contact for at least 0.5 hours at the temperature within the limits of about 180-250 degrees C. The contact is performed usually agitating by carrying out shaking of whether the closed pressurized container is vibrated. And an ion-exchange fluorine polymer is obtained by cooling.

[0010] The solution of said ion-exchange fluorine polymer dissolves a polymer into a solution with an

alcoholic solution, for example, propanol, isopropyl alcohol, other alcohols, for example, ethanol, or a butanol. In this invention, the organic solvent which mixed one or more at least among water-soluble organic solvents, such as a methanol, propanol, isopropanol, butyl alcohol, isobutyl alcohol, methoxy ethanol, methoxy propanol, ethoxy ethanol, and a methyl ethyl ketone, can also be used. An organic solvent is [80 % of the weight - 100 % of the weight and water] 0 % of the weight - 20 % of the weight, preferably, an organic solvent is 85 % of the weight - 100 % of the weight, water is 0 % of the weight - 15 % of the weight, and an organic solvent is [90-100, and the water of the mixing ratio of the water-soluble organic solvent and water] 0-10 especially preferably. The range of the contact angle over said carbon base material of this mixed solvent is 5 degrees or less. If there are few organic solvents in a mixed solvent than 80 % of the weight, the contact angle over said carbon base material of the mixed solvent will exceed 5 degrees, and the contact angle in each case will tend to become large with reduction of the amount in which the organic solvent is contained further. When this contact angle exceeded 5 degrees, it turned out that the touch area of an ion-exchange polymer solution and a catalyst particle decreases rapidly, and ion conductivity falls.

[0011]

[Example] Hereafter, the example of this invention is explained.

(Example) To the electrode made from E-TEK (amount of platinum support 0.5 mg/cm² on a carbon base material) The NAFION (trademark) solution by U.S. Du Pont which penetrates alternatively the mixed solvent and proton of the ethyl alcohol/water [as / whose contact angle over carbon support is 1.8 degrees] for example, after applying according to brush processing or spraying and fully drying, as ion exchange membrane which consists of a copolymer of this electrode layer, perfluoro vinyl ether, and tetrafluoroethylene the U.S. Du Pont make of 50 micrometers of thickness which already ended hydrolysis - by NAFION(trademark) NF 112, thermocompression bonding of an electrode layer and the film was carried out the condition for 135 degrees C, 50kg/cm², and 2 minutes, and the membrane electrode zygote was produced. It has the slot of the Serpentine mold with which this membrane electrode zygote was fixed to the interior, and oxygen is supplied [the inside of the fuel cel for an experiment which used the carbon block whose electrode surface product is 2 25cm, and the field heater] for the hydrogen gas as fuel gas as oxidant gas from an external source of supply by the 50-degree C basis, respectively, it operates, and the electrical potential difference and current density of this membrane electrode zygote are measured. The result is reported to drawing 1 .

[0012] (Example of a comparison) To the electrode made from E-TEK (amount of platinum support 0.5 mg/cm² on a carbon base material) The NAFION (trademark) solution by U.S. Du Pont which penetrates alternatively the mixed solvent and proton of the propyl alcohol/water whose contact angle over a carbon support base is 38 degrees this electrode layer after applying and fully drying like an example, and the U.S. Du Pont make of 50 micrometers of thickness which already ended hydrolysis -- by NAFION(trademark) NF 112, thermocompression bonding of an electrode layer and the film was carried out the condition for 135 degrees C, 50kg/cm², and 2 minutes, and the membrane electrode zygote was produced. The obtained membrane electrode zygote is fixed in the fuel cel for an experiment like an example, and the electrical potential difference and current density of this membrane electrode zygote are measured. The result is reported to drawing 1 .

[0013] The voltage-current property of the membrane electrode zygote of the example of this invention and the example of a comparison was shown in drawing 1 , respectively. The current-voltage curve of the membrane electrode zygote using the solvent of the example of this invention is as Curve A, and showed cell voltage 0.38V in current density 2 A/cm². On the other hand, the current-voltage curve of the membrane electrode zygote of the example of a comparison is as Curve B, and showed cell voltage 0.2V in current density 2 A/cm².

[0014] Drawing 1 showed that adjusted the contact angle over the catalyst support carbon base material of the solvent of the solid-state polyelectrolyte solution which constitutes a solid-state polyelectrolyte mold fuel cell, and the solid-state polyelectrolyte mold fuel cell of this invention with which a catalyst particle is enough covered with an electrolyte was excellent in the cell output compared with the conventional solid-state polyelectrolyte mold fuel cell which is not adjusting the contact angle. It turned out that the effectiveness of this invention is acquired with the solid-state polyelectrolyte solution using a solvent with which the contact angle over the catalyst support carbon base material becomes 5 degrees or less. [0015]

[Effect of the Invention] When the solid-state polyelectrolyte of the catalyst bed which constitutes a membrane electrode zygote is formed according to this invention so that the carbon support base which supported the catalytic activity particle may be contacted as stated above, By adjusting the contact angle over said carbon support base of the solid-state polyelectrolyte solution As a result of increasing the area

which a solid-state polyelectrolyte fixes and joins to said carbon base material, when the use effectiveness and the ionic conductivity of a catalytic activity particle in the inside of the catalyst bed improve, outstanding cell output characteristics can be obtained.

[Translation done.]

* NOTICES *

JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.**** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1] The solid-state polyelectrolyte mold fuel cell characterized by to constitute from solid-state polyelectrolyte film which joins to the electrode which consists of the catalyst bed which formed by fixing on said carbon base material using the mixture of the solvent with which the contact angle over the carbon base material which supports the particle which shows catalytic activity, and the carbon base material which supports said catalytic-activity particle becomes 5 or less times, and a solid-state polyelectrolyte, and the diffusion layer in contact with said catalyst bed, and said electrode, and constitutes a membrane electrode zygote.

[Claim 2] The solid-state polyelectrolyte mold fuel cell according to claim 1 characterized by said solid-state polyelectrolyte considering as a perfluoro sulfonic-acid polymer.

[Translation done.]

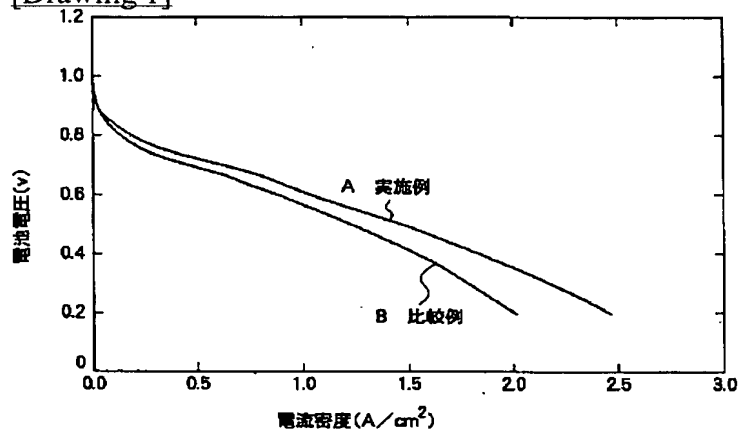
* NOTICES *

JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

DRAWINGS

[Drawing 1]



[Translation done.]